

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平11-43320

(43) 公開日 平成11年(1999) 2月16日

(51) Int.Cl. ⁹	識別記号	F I	
C 0 1 B 33/18		C 0 1 B 33/18	C
C 0 8 K 3/36		C 0 8 K 3/36	
	7/14		7/14
C 0 9 C 1/28		C 0 9 C 1/28	
	3/12		3/12
審査請求 未請求 請求項の数 9 O L (全 8 頁) 最終頁に続く			

(21) 出願番号	特願平9-200010	(71) 出願人	000221122 東芝セラミックス株式会社 東京都新宿区西新宿1丁目26番2号
(22) 出願日	平成9年(1997) 7月25日	(72) 発明者	村山 晴男 神奈川県秦野市曾屋30番地 東芝セラミックス株式会社開発研究所内
		(72) 発明者	南 俊郎 神奈川県秦野市曾屋30番地 東芝セラミックス株式会社開発研究所内
		(72) 発明者	白石 耕一 神奈川県秦野市曾屋30番地 東芝セラミックス株式会社開発研究所内
		(74) 代理人	弁理士 泉 克文 最終頁に続く

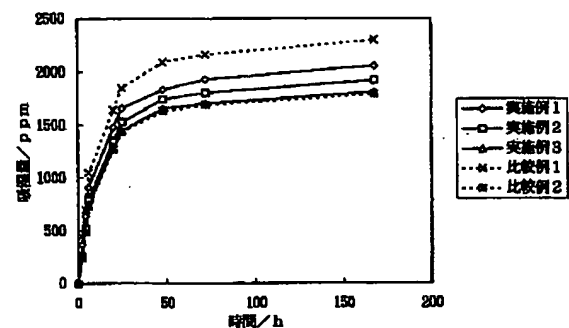
(54) 【発明の名称】 シリカフィラーの製造方法ならびにフィラー用組成物およびその製造方法

(57) 【要約】

【課題】 クラック、ボイドなどのプラスチック・パッケージの不良を防止する。

【解決手段】 シランカップリング処理を行う前に粒状シリカを100℃～1000℃の温度、好ましくは150℃～800℃の温度で1時間～24時間加熱し、それから粒状シリカの表面に存在しているシラノール基 (S i - O H) を減少させる。粒状シリカの形態は球状のものが好ましい。

図 1



(2)

1

【特許請求の範囲】

【請求項1】 (a) 粒状シリカを準備する工程と、
(b) 前記粒状シリカを100℃～1000℃の温度で1時間～24時間加熱して、それら粒状シリカの表面に存在しているシラノール基を減少させる工程と、
(c) シラノール基を減少させた前記粒状シリカについてシランカップリング処理を行う工程とを備えてなることを特徴とするシリカフィラーの製造方法。

【請求項2】 前記工程(b)において、前記粒状シリカが150℃～800℃の温度で加熱される請求項1に記載のシリカフィラーの製造方法。

【請求項3】 前記工程(a)において準備される前記粒状シリカが、球状である請求項1または2に記載のシリカフィラーの製造方法。

【請求項4】 (a) 粒状シリカを準備する工程と、
(b) 前記粒状シリカにシランカップリング剤を噴霧する工程と、

(c) 前記シランカップリング剤を噴霧した前記粒状シリカを60℃～300℃の温度で30分から24時間、攪拌する工程とを備えてなることを特徴とするシリカフィラーの製造方法。

【請求項5】 前記工程(a)において準備される前記粒状シリカが、球状である請求項4に記載のシリカフィラーの製造方法。

【請求項6】 球状のシリカフィラー99～80重量%と、ガラス繊維1～20重量%とを含んで構成されることを特徴とするフィラー用組成物。

【請求項7】 前記球状のシリカフィラーとして、請求項1～5のいずれかに記載の製造方法により製造されたシリカフィラーが使用される請求項6に記載のフィラー用組成物。

【請求項8】 (a) 球状のシリカフィラーを生成する工程と、(b) 前記球状のシリカフィラー99～80重量%に対し、ガラス繊維を1～20重量%さらに添加して混合する工程とを備えてなることを特徴とするフィラー用組成物の製造方法。

【請求項9】 前記工程(a)が、請求項1～5のいずれかに記載の製造方法により実行される請求項8に記載のフィラー用組成物の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】この発明は、シリカフィラーの製造方法ならびにフィラー用組成物およびその製造方法に関し、さらに言えば、半導体集積回路装置(Large-Scale Integration、LSI)のプラスチック・パッケージを形成するのに使用される樹脂組成物において、そのマトリックス樹脂に対して充填材として添加されるシリカフィラーの製造方法と、シリカフィラーを用いるフィラー用組成物とその製造方法に関する。

【0002】

2

【従来の技術】いわゆる表面実装型のLSIプラスチック・パッケージでは、そのパッケージをプリント配線板上に実装するための半田付け工程において、200℃以上の高温に曝される。この工程において、パッケージに膨張、クラックなどの不良が発生しやすい。これらの不良の原因は、大気中よりパッケージが吸収した水分が高温により半田付け工程で気化することにある。

【0003】この種プラスチック・パッケージの水分吸収量は、パッケージ用樹脂組成物のマトリックス材料である熱硬化性樹脂(例えば、エポキシ樹脂など)が最も多い。そこで、従来は、吸湿性の低い熱硬化性樹脂を使用したり、熱硬化性樹脂に比べて吸湿量の少ないシリカフィラーの配合量を多くしたりして、パッケージ中に存在する水分量を抑制する対策が採られて来た。

【0004】しかし、近年、この種プラスチック・パッケージはますます大型化しており、それに伴って、シリカフィラーの配合量が90重量%を越えるようになっていく。したがって、シリカフィラーの配合量をこれ以上多くすることは困難である。さらに、熱硬化性樹脂の吸湿性をこれ以上下げることが困難である。このため、上述した従来の手法では、吸収水分によるパッケージ不良に対応できなくなりつつあるという問題がある。

【0005】また、従来より一般的に使用されてきたシリカフィラーの形態は、粒径が1μm以下の微粉から、粒径が100μm程度の破碎粒である。しかし、破碎粒では、パッケージ用樹脂組成物への添加可能量の上限が低くなる。このため、近年は球状のシリカフィラーが多く使用される傾向がある。

【0006】しかし、球状のシリカフィラーは、破碎粒状のものに比べて表面が滑らかであるため、破碎粒状のものよりマトリックス樹脂との密着性が劣り、プラスチック・パッケージの十分な機械的強度が得られないという問題がある。

【0007】さらに、一般に、シリカフィラーは、マトリックスとしての熱硬化性樹脂と混合されてからパッケージ用樹脂組成物とされる。この際に、シリカフィラーにはシランカップリング剤による表面処理(カップリング処理)が施される。これは、パッケージとして成形・硬化後の熱硬化性樹脂とシリカフィラーとの密着性(なじみ)を改善して、プラスチック・パッケージとしての機械的強度を向上させるためである。また、熔融状態にあるパッケージ用樹脂組成物を用いてパッケージをトランスファー成形する際の流動性を改善するためでもある。

【0008】シリカは、SiO₂なる化学式で表される化合物であるが、その表面にはシラノール基(Si-OH)が存在している。カップリング処理により、そのシラノール基の結合手にシランカップリング剤の結合手が結びつく。シランカップリング剤の他の結合手は、マトリックス材料としての熱硬化性樹脂となじみやすい。こ

(3)

3

うして、マトリックス樹脂とシリカフィラーとの密着性が改善される。

【0009】このシランカップリング剤によるカップリング処理は、通常、次のようにして行われる。すなわち、まず、適当なシランカップリング剤の原液、あるいは、その原液を水やエタノールなどの溶媒で希釈した溶液を準備する。次に、そのシランカップリング剤の原液または溶液をシリカ粒に噴霧した後、そのシリカ粒を攪拌してまんべんなくカップリング剤を付着させる。なお、そのカップリング剤の溶液を使用した場合は、シリカ粒から溶媒を除去するため、攪拌後に100℃～150℃の温度で30分から1時間、乾燥させる工程が付加される。

【0010】しかし、このようなシランカップリング処理を行った粒状シリカフィラーを用いたパッケージ用樹脂組成物では、その組成物の硬化により形成されるプラスチック・パッケージ内にボイドが形成されやすく、その結果、パッケージの機械的強度が低下しやすいという問題がある。

【0011】なお、フィラー用シリカの表面改質方法として、特開平6-228457号公報に開示された「無機素材の表面改質方法、成形材料用樹脂組成物およびそれらに用いる含珪素ポリマーの製造方法」がある。これは、有機媒体に対する無機素材の濡れ、分散性または接着性等を向上させるとともに、これらの向上効果を長時間維持させるものである。

【0012】

【発明が解決しようとする課題】前述したように、従来の手法では、プラスチック・パッケージが吸収した水分に起因するクラック発生などのパッケージ不良を防止することができないという問題がある。

【0013】また、シランカップリング剤による表面処理を行った粒状シリカフィラーを用いた場合には、プラスチック・パッケージに形成されるボイドによりその機械的強度が低下しやすいという問題がある。

【0014】球状のシリカフィラーを用いた場合には、マトリックス樹脂との低密着性に起因して、十分な機械的強度を持つプラスチック・パッケージが得られないという問題がある。

【0015】そこで、この発明の目的は、クラック、ボイドなどのプラスチック・パッケージの不良を防止することができるシリカフィラーの製造方法を提供することにある。

【0016】この発明の他の目的は、シランカップリング剤による表面処理を行った場合にも、十分な機械的強度を持つプラスチック・パッケージが得られるシリカフィラーの製造方法を提供することにある。

【0017】この発明のさらに他の目的は、プラスチック・パッケージにクラックなどの不良が発生し難いフィラー用組成物と、その製造方法を提供することにある。

4

【0018】

【課題を解決するための手段】

(1) この発明の第1のシリカフィラーの製造方法は、シランカップリング処理を行う前に粒状シリカを100℃～1000℃の温度で1時間～24時間加熱し、それら粒状シリカの表面に存在しているシラノール基(Si-OH)を減少させることを特徴とする。

【0019】(2) 本発明者らは、フィラーとしての粒状シリカと硬化後のパッケージ用樹脂組成物との界面に水分が吸着されており、その水分がプラスチック・パッケージのクラックの原因の一つとなっていることを見出し、この発明の第1のシリカフィラーの製造方法を発明するに至った。このシリカ/樹脂(フィラー/マトリックス)界面に存在する吸着水分がプラスチック・パッケージのクラック発生の原因となる理由は、次のように推測される。

【0020】シリカは SiO_2 なる化学式で表される化合物である。[従来の技術]の欄ですでに説明したように、粒状シリカの表面には通常、シラノール基が存在している。シランカップリング処理では、そのシラノール基に有機カップリング剤の分子が結合しやすい事実を利用している。本発明者らの調査・研究によれば、シランカップリング処理後の粒状シリカの表面に未反応のシラノール基が残っていることが判明した。また、粒状シリカの表面のシラノール基には、水素結合によって水(H_2O)が吸着しやすいこと、こうしてシラノール基に吸着した水にはさらに水が吸着しやすいことも分かった。これらの事実から、シリカ/樹脂界面の吸着水分がパッケージのクラック発生の原因となっているとの見解が得られた。

【0021】(3) この発明の第1のシリカフィラーの製造方法では、粒状シリカを100℃～1000℃の温度で1時間～24時間加熱することにより、粒状シリカの表面に存在するシラノール基の量を次工程のカップリング処理に必要な程度まで減少させる。これにより、フィラーとしての粒状シリカと硬化後のマトリックス用樹脂との界面に存在するシラノール基の量(したがって吸着水分量または水分の吸着速度)が減少する。換言すれば、プラスチック・パッケージ自体の吸湿性が従来よりいっそう低下する。その結果、クラック、ボイドなどのプラスチック・パッケージの不良を防止することが可能となる。

【0022】(4) この発明の第1のシリカフィラーの製造方法では、粒状シリカとしては、特に限定されず任意のものが使用できる。ただし、粒状シリカの形態は、球状のものが好ましい。シリカ/樹脂界面の水分吸着または蓄積を抑制するには、粒状シリカの表面積を小さくすることが望ましいからである。

【0023】また、温度範囲を100℃～1000℃に限定するのは、温度が100℃未満では、シラノール基

(4)

5

の除去にほとんど効果がなく、逆に1000℃を越えると、シリカ粒子が焼結を起こしたり、カップリングに必要な水分がなくなり、マトリックス樹脂との結合力が低下したりする恐れがあるからである。

【0024】この温度範囲は、好ましくは150℃～800℃に設定される。この温度範囲であれば、シラノール基の量の減少がいっそう効果的に行われるからである。

【0025】加熱処理の時間を1時間～24時間に限定するのは、1時間未満では、シラノール基の除去が十分でない場合があるからであり、また、24時間を越えて加熱すると、カップリングに必要な水分がなくなり、マトリックス樹脂との結合力が低下する恐れがあるからである。

【0026】加熱処理の時間は、使用するシリカ粒子の種類や量、残すべきシラノール基の量などに応じて、上記の範囲内で適宜設定される。処理温度が低温であれば、処理時間は長く必要である。処理温度が高温になればなるほど、処理時間は短くてすむ。

【0027】シランカップリング処理に使用するカップリング剤としては、特に限定されず任意のものが使用できる。

【0028】(5) この発明の第2のシリカフィラーの製造方法は、粒状シリカにシランカップリング剤を噴霧した後、その粒状シリカを60℃～300℃の温度で30分から24時間、攪拌することとを特徴とする。

【0029】(6) 本発明者らは、シリカフィラーのシランカップリング処理において、シリカの全粒子について均一に表面処理が行われず、一部のシランカップリング剤が未反応に残っていることが多いため、その未反応シランカップリング剤がプラスチック・パッケージ中に形成されるボイドの原因になっていることを見出し、この発明の第2のシリカフィラーの製造方法を発明するに至った。

【0030】すなわち、本発明者らの研究によれば、未反応のシランカップリング剤は、その後のパッケージ用樹脂組成物の作製工程やトランスファー成形工程において分解反応が進み、アルコール（例えばメチルアルコールやエチルアルコール）を生成することが判明した。そして、そのアルコールがパッケージ用樹脂組成物中で気化する結果、その組成物が硬化して得られるプラスチック・パッケージ内にボイドが形成されることが分かった。これらの事実に基づき、この発明の第2のシリカフィラーの製造方法が得られた。

【0031】(7) この発明の第2のシリカフィラーの製造方法では、粒状シリカにシランカップリング剤を噴霧した後、60℃～300℃の温度で30分から24時間、攪拌処理を行うので、すべてのシランカップリング剤が反応し、未反応のシランカップリング剤が残存しない。その結果、プラスチック・パッケージのボイド形

6

成が防止される。これにより、ボイドに起因するプラスチック・パッケージの機械的強度の低下も防止される。

【0032】(8) この発明の第2のシリカフィラーの製造方法では、粒状シリカとしては、特に限定されず任意のものが使用できる。ただし、粒状シリカの形態は、球状のものが好ましい。シランカップリング剤のカップリング反応を促進させるには、粒状シリカの表面積を小さくすることが望ましいからである。

【0033】この発明の第2のシリカフィラーの製造方法において、60℃～300℃の温度範囲に限定するのは、温度が60℃未満であると、シランカップリング剤のカップリング反応を促進させる効果が十分でなく、逆に、300℃を越えると、シランカップリング剤が分解してしまう恐れがあるからである。

【0034】好ましい温度範囲は、100℃～200℃である。その理由は、温度が100℃未満であると、カップリング反応時に生成されるアルコール分を除去するのに要する時間が長くなり、200℃を越えると、シリカ粒子が凝集してしまう恐れがあるからである。

【0035】また、攪拌時間を30分から24時間に限定するのは、30分未満では、シランカップリング剤がシリカ粒子の表面に均一に付着せず、また、通常は24時間が経過する以前にカップリング反応が終了するので、24時間を越えて攪拌する必要がないからである。

【0036】好ましい攪拌時間は、1時間～5時間である。その理由は、1時間以上攪拌することにより、シランカップリング材のシリカ粒子への付着がよりいっそう均一になり、攪拌時間が5時間を越えると、攪拌容器の内面に使用されるステンレス等からの汚染量が増加するからである。

【0037】攪拌時間は、使用するシリカ粒子の種類や量、残すべきシラノール基の量などに応じて、上記の範囲内で適宜設定される。処理温度が低温であれば、処理時間は長く必要である。処理温度が高温になればなるほど、処理時間は短くてすむ。

【0038】シランカップリング処理に使用するカップリング剤としては、特に限定されず任意のものが使用できる。

【0039】(9) この発明のフィラー用組成物は、球状のシリカフィラー99～80重量%と、ガラス繊維1～20重量%とを含んで構成されることを特徴とする。

【0040】(10) 本発明者らは、球状のシリカ粒子をフィラーとして使用したパッケージ用樹脂組成物について種々検討した結果、球状のシリカフィラーにガラス繊維を添加することにより、熔融時の流動性の低下を抑制しながら、硬化時における熱硬化性樹脂との密着性が向上することを見出し、この発明のフィラー用組成物を発明するに至った。

【0041】この発明のフィラー用組成物では、球状の

(5)

7

シリカフィラーに所定量のガラス繊維が添加されているので、シリカフィラーの粒子表面の滑らかさに起因するマトリックス樹脂との密着性の低下が防止される。その結果、プラスチック・パッケージにクラックなどの不良が発生し難くなる。

【0042】(11) この発明のフィラー用組成物において、ガラス繊維を1~20重量%とするのは、1重量%未満とすると、ガラス繊維の添加による密着性向上効果が得られないからであり、20重量%越えとすると、ガラス繊維の量が多すぎて成形時の流動性などに悪影響が生じるからである。

【0043】球状のシリカフィラーの配合量は、ガラス繊維の添加量に応じて99~80重量%の範囲内で適当に設定される。

【0044】この発明のフィラー用組成物では、必要に応じて、その他の成分、例えば、マトリックス樹脂の重合促進用の触媒、離型剤、着色剤などを含んでいてもよい。

【0045】好ましくは、前記球状のシリカフィラーとして、上記(1)~(8)に記載のいずれかの製造方法により製造されたシリカフィラーが使用される。こうすると、プラスチック・パッケージの不良がいつそう発生し難くなる利点がある。

【0046】(12) この発明のフィラー用組成物の製造方法は、球状のシリカフィラーを生成した後、その球状シリカフィラー99~80重量%に対し、ガラス繊維を1~20重量%さらに添加して混合することを特徴とする。

【0047】(13) この方法によれば、(9)に述べたこの発明のフィラー用組成物が容易に得られる。

【0048】球状のシリカフィラー生成工程としては、(i)高純度の珪石や水晶を粉砕し、得られた微粉末を液化石油ガス(Liquefied Petroleum Gas, LPG)ー酸素(または水素)炎中に噴射して熔融させ、その熔融体の表面張力で球状化させる方法(天然法)、(ii)珪酸アルカリを液相で酸により分解し、生成したシリカ・スラリーをイオン交換により不純物を除去した後、脱水、乾燥して得られる顆粒状のシリカゲルをミルで粉砕し、その後天然法と同様に火炎熔融する方法(珪酸アルカリ法)とが代表的である。しかし、これら以外の方法も利用可能である。

【0049】ガラス繊維の製造方法としては、特に限定されず任意のものが使用できる。例えば、珪砂等の原料を熔融し、これから連続繊維を引き出した後、これに高速の燃焼ガスを吹き付けて繊維を微細化する方法(火炎挿入法)が使用できる。

【0050】好ましくは、球状のシリカフィラー生成工程が、上記(1)~(8)に記載のいずれかの製造方法により実行される。こうすると、プラスチック・パッケージの不良がいつそう発生し難くなる利点がある。

8

【0051】

【発明の実施の形態】以下、この発明の実施の形態を具体的に説明する。

【0052】[実施例1] まず、珪石を粉砕し、得られた微粉末をLPGー酸素ガスの火炎により熔融して球状化し、球状のシリカ粒子を得た。次に、このシリカ粒子の表面の余分なOH基を除去するため、このシリカ粒子1kgを150℃の温度で24時間加熱処理した。その後、シランカップリング処理のために、シランカップリング剤(東芝シリコン株式会社製、商品名: TSL 8350、主成分: γ -グリシドキシプロピルトリメトキシシラン)を、加熱処理した球状のシリカ粒子に噴霧し、室温(15℃)で乾燥させた。

【0053】その後、次のような条件で「吸湿量」と「半田耐熱性」について試験を行った。

【0054】「吸湿量」試験では、マトリックスとしてのエポキシ樹脂(住友化学株式会社製、商品名: ESCN-220L)15.2重量部と、エポキシ硬化剤(住友化学株式会社製、商品名: Sumicure M)4.6重量部と、硬化促進剤(住友化学株式会社製、商品名: Sumicure D)0.2重量部に、上記シランカップリング処理を行った球状シリカフィラー80重量部を添加してロール混練し、プラスチックパッケージ用樹脂組成物を得た。この組成物をトランスファー成形法により成形し、直方体状の成形体(30mm角、厚さ1mm)を得た。その後、得られた成形体を温度85℃、相対湿度85%の環境に168時間放置し、吸湿量を測定した。その結果を図1に示す。

【0055】「半田耐熱性」試験では、18mm角のシリコンチップをステージに接着したリードフレームを、上記プラスチック・パッケージ用材料でトランスファー成形し、184ピンQFP(Quad Flat Package)を得た。成形したQFPの数は10個とした。そのQFPを温度85℃、相対湿度85%の環境に168時間放置して吸湿させた後、245℃の温度で60秒間加熱した。その後、内部クラックおよび外部クラックの有無を検査した。

【0056】なお、内部クラックの検査は超音波探傷機で、外部クラックの検査は顕微鏡で行った。その結果を表1に示す。表1における数値は、外部または内部クラックの存在したQFPの数である。

【0057】[実施例2] 実施例1と同じ球状シリカフィラー1kgを500℃の温度で10時間加熱処理し、シリカフィラーの表面の余分なOH基を除去した。その後、実施例1と同じシランカップリング剤を用いて実施例1と同じ方法でシランカップリング処理を行った。

【0058】その後、実施例1と同じ条件で「吸湿量」と「半田耐熱性」について試験を行った。その結果を図1と表1に示す。

【0059】[実施例3] 実施例1と同じ球状シリカフ

(6)

9.

イラー1kgを800℃の温度で4時間加熱処理した。その後、実施例1と同じシランカップリング剤を用いて実施例1と同じ方法でシランカップリング処理を行った。

【0060】その後、実施例1と同じ条件で「吸湿量」と「半田耐熱性」について試験を行った。その結果を図1と表1に示す。

【0061】【比較例1】実施例1と同じ球状シリカフィラー1kgに対して、加熱処理をしないで直ちに、実施例1と同じシランカップリング剤を用いて実施例1と同じ方法でシランカップリング処理を行った。

【0062】その後、実施例1と同じ条件で「吸湿量」*

10

*と「半田耐熱性」について試験を行った。その結果を図1と表1に示す。

【0063】【比較例2】実施例1と同じ球状シリカフィラー1kgを1050℃の温度で2時間加熱処理した。その後、実施例1と同じシランカップリング剤を用いて実施例1と同じ方法でシランカップリング処理を行った。

【0064】その後、実施例1と同じ条件で「吸湿量」と「半田耐熱性」について試験を行った。その結果を図1と表1に示す。

【0065】

【表1】

(表1)

	実施例1	実施例2	実施例3	比較例1	比較例2
外部クラック	1	0	0	5	2
内部クラック	2	1	0	7	4

【0066】図1と表1より、実施例1～3では、「吸湿量」は比較例1および2と同等であるか低くなっており、「半田耐熱性」は明らかに比較例1および2よりも良好であることが分かる。

【0067】【実施例4】まず、珪石を粉碎し、得られた微粉末をLPG-酸素ガスの火炎中に噴射して熔融することによって球状のシリカ粒子を得た。次に、このシリカ粒子を適当な容器内に収容してから、0.5wt%のシランカップリング剤（東芝シリコン株式会社製、商品名：TSL8350、主成分γ-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン）を噴霧した。その後、この球状シリカ粒子を100℃の温度で5時間攪拌し、シランカップリング処理を終えた。

【0068】その後、次のような条件で「曲げ強度」と「半田耐熱性」について試験を行った。

【0069】「曲げ強度」試験では、エポキシ樹脂（住友化学株式会社製、商品名：ESC-N-220L）15.2重量部と、エポキシ硬化剤（住友化学株式会社製、商品名：Sumicure M）4.6重量部と、硬化促進剤（住友化学株式会社製、商品名：Sumicure D）0.2重量部に、上記シランカップリング処理を行った球状シリカフィラー80重量部を添加してロール混練し、プラスチック・パッケージ用材料を得た。この材料をトランスファー成形法により成形し、直

※m)を得た。その後、得られた成形体を室温（15℃）と高温（240℃）で曲げ強度を測定した。測定方法は、JIS K6911に従って行った。その結果を表2に示す。

【0070】「半田耐熱性」では、18mm角のシリコンチップをステージに接着したリードフレームを、上記プラスチック・パッケージ用材料でトランスファー成形し、184ピンQFPを得た。そのQFPを温度85℃、相対湿度85%の環境に168時間放置して吸湿させた後、245℃の温度で60秒間加熱した。その後、実施例1で述べたのと同じ方法で内部クラックおよび外部クラックの有無を検査した。測定したパッケージ数は10である。クラックの発生したパッケージ数を表2に示す。

【0071】【比較例3】まず、実施例4と同じ球状シリカ粒子を適当な容器内に収容してから、実施例4と同じシランカップリング剤（東芝シリコン株式会社製、商品名：TSL8350）を噴霧した。その後、この球状シリカ粒子を室温で30分間攪拌し、シランカップリング処理を終えた。

【0072】その後、実施例4と同じ条件で「曲げ強度」と「半田耐熱性」について試験を行った。その結果を表2に示す。

【0073】

【表2】

(表2)

		実施例4	比較例3
曲げ強度 (MPa)	室温	160	140
	240℃	25	18
半田耐熱性	外部クラック	0	2
	内部クラック	0	4

【0074】表2より、実施例4では、「曲げ強度」は比較例3よりも高く、「半田耐熱性」も明らかに比較例

3よりも良好であることが分かる。

【0075】【実施例5】天然法によって得られた平均

(7)

11

粒径 $20\mu\text{m}$ の球状シリカ粒子90重量%に、火炎挿入法によって得られたガラス繊維（繊維長 $30\mu\text{m}$ 、繊維径 $5\mu\text{m}$ ）を10重量%添加し、混合してフィラー用組成物を得た。このフィラー用組成物を90重量%、マトリックスとしてのエポキシ樹脂を5.5重量%、硬化剤としてのフェノール樹脂を4.5重量%の配合量で混合した後、この混合物をロール混練し、半導体プラスチック・パッケージ用樹脂組成物を得た。

【0076】このパッケージ用樹脂組成物を 180°C の温度まで加熱して溶融させ、その粘度を測定した。また、実施例3と同様にして室温と 240°C において曲げ*

12

*強度を測定した。その結果は表3に示す通りである。

【0077】【比較例4】実施例5と同じ球状シリカ90重量%に、エポキシ樹脂を5.5重量%、フェノール樹脂を4.5重量%に配合量で混合した後、この混合物をロール混練し、プラスチック・パッケージ用樹脂組成物を得た。

【0078】この樹脂組成物について、実施例5と同様にして、溶融粘度と曲げ強度を測定した。その結果は表3に示す通りである。

【0079】

【表3】

(表3)

溶融粘度 (Pa・s)		実施例5	比較例4
室温		41	40
曲げ強度 (MPa)	室温	135	125
	240°C	27	21

【0080】表3より明らかなように、実施例5は、比較例4に比べて溶融粘度が2.5%高くなっているが、使用上は問題ないレベルである。曲げ強度については、実施例5は、比較例4に比べて室温で8%、 240°C で30%向上している。これは、プラスチック・パッケージのクラックを防止するのに十分である。

【0081】

【発明の効果】以上説明した通り、この発明のシリカフィラーの製造方法によれば、クラック、ボイドなどのプラスチック・パッケージの不良を防止することができる。また、シランカップリング剤による表面処理を行った場合にも、十分な機械的強度を持つプラスチック・パ

ッケージが得られる。

【0082】この発明のフィラー用組成物によれば、プラスチック・パッケージにクラックなどの不良が発生し難くなる。

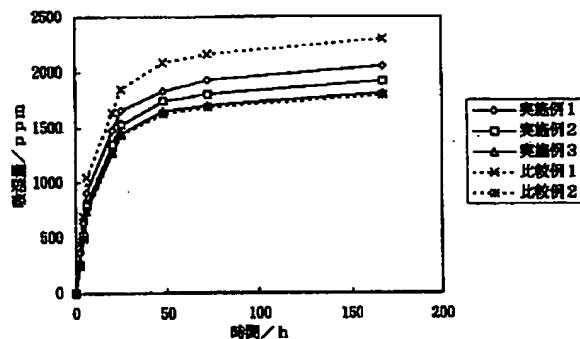
【0083】この発明のフィラー用組成物の製造方法によれば、プラスチック・パッケージにクラックなどの不良が発生し難いフィラー用組成物を得られる。

【図面の簡単な説明】

【図1】この発明のシリカフィラーの製造方法の実施例1～3および比較例4および5により得られた吸湿量の時間変化を示すグラフである。

【図1】

図1



フロントページの続き

(51) Int. Cl. 6

H01L 21/56
23/29

識別記号

FI

H01L 21/56
23/30

R
R

(8)

23/31

(72) 発明者 高橋 研司
神奈川県秦野市曾屋30番地 東芝セラミッ
クス株式会社開発研究所内